

Abteilung Strahlenschutz
KERNFORSCHUNGSANLAGE JÜLICH
des Landes Nordrhein-Westfalen

Gammaspektrometrische Untersuchung
von Niederschlagsproben
nach der Graukeilmethode

von

R. Tzschaschel

Jül - 6 - ST

Mai 1961





Berichte der Kernforschungsanlage Jülich – Nr. 6

Abteilung Strahlenschutz Jül – 6 – ST

Dok.: RAIN WATER-GAMMA SPECTRA * DK 551.578.1 – 539.166

Zu beziehen durch: ZENTRALBIBLIOTHEK der Kernforschungsanlage Jülich,
Jülich, Bundesrepublik Deutschland

Internationale Monatsschrift für angewandte Atomenergie in Industrie, Landwirtschaft, Naturwissenschaften und Medizin unter besonderer Berücksichtigung der Medizinischen Strahlenbiologie sowie des Strahlenschutzes

Schriftleiter: Professor Dr. rer. nat. Dr. med. E. H. Graul, Marburg/L., Ockershäuser Allee 4 · Verlag G. Braun, Karlsruhe, Karl-Friedrich-Str. 14—18

Gammastrahlenspektrometrische Untersuchung von Niederschlagsproben nach der Graukeilmethode¹

Von R. Tzschaschel

Aus der Abteilung Strahlenschutz der Kernforschungsanlage Jülich des Landes Nordrhein-Westfalen

Gammastrahlenspektrometrische Untersuchung von Niederschlagsproben nach der Graukeilmethode

Nach Bekanntwerden der am 13. 2. 1960 in der Sahara erfolgten Kernwaffenversuchsexplosion wurden in Erweiterung der Nullpegelüberwachung der Kernforschungsanlage des Landes Nordrhein-Westfalen bei Jülich wöchentlich Niederschlagsproben gesammelt, die Gammaaktivitäten der Eindampfrückstände gemessen und die Nuklidzusammensetzung gammastrahlenspektrometrisch ermittelt. Die Ergebnisse zeigen auf der einen Seite eine gute Übereinstimmung zu den Untersuchungsbefunden von Habashi und Schönfeld und demonstrieren andererseits die Brauchbarkeit der Graukeil-Gammastrahlenspektrometrie als zuverlässiger und schneller Methode zur qualitativen Bestimmung der Nuklidzusammensetzung in einem niedrigen Aktivitätsniveau.

Gamma-Spectrometric Examination of Precipitation Samples with the Gray-Wedge Method

After announcement of the nuclear test explosion in the Sahara on Feb. 13, 1960, precipitation samples were collected weekly at the atomic research center in Jülich as an adjunct to zero-gauge monitoring. The gamma activity of the evaporation residues was measured and the nuclide composition determined by gamma spectrometry. The results show close agreement with the findings of Habashi and Schönfeld, and also demonstrate the usefulness of gray-wedge gamma spectrometry as a quick and reliable method for qualitative determination of nuclide composition on a low level of activity.

page 170

Examen gammaspectrométrique d'échantillons de précipitations à l'aide de la méthode du coin gris

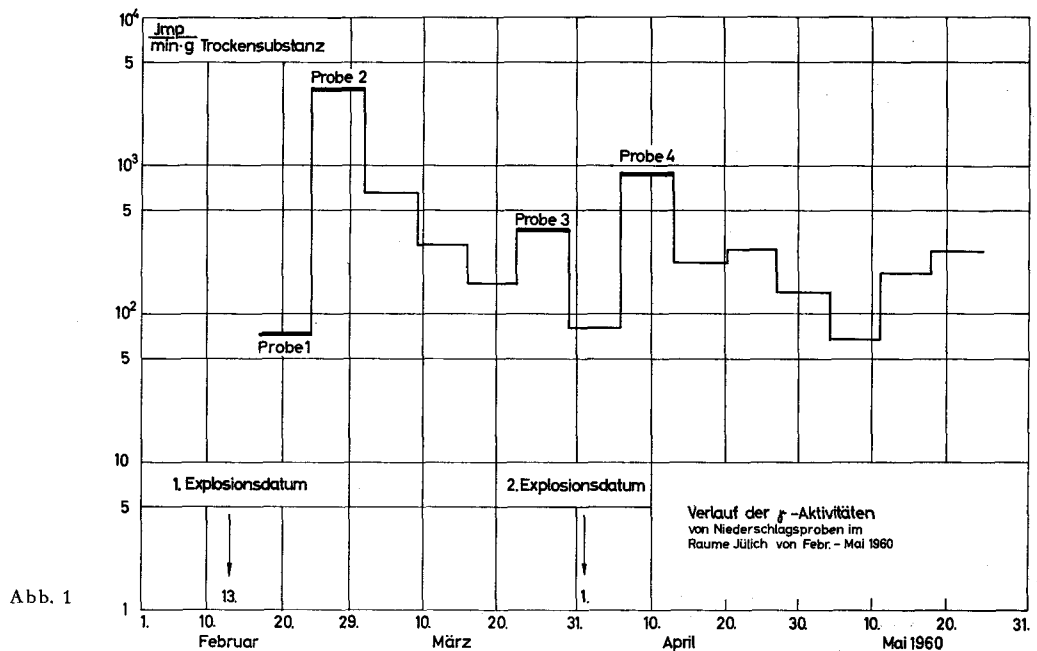
Après la publication des explosions nucléaires au Sahara du 13/2/1960, la surveillance du bruit de fond au centre de recherches nucléaires à Jülich fut étendue au contrôle hebdomadaire des précipitations, dont les échantillons furent collectés. L'activité gamma fut mesurée dans les résidus d'évaporation et la composition nucléaire fut déterminée de manière gammaspectrométrique. D'une part les résultats montrent un accord satisfaisant avec les résultats de Habashi et Schönfeld et d'autre part, ils démontrent que la méthode de la spectrométrie gamma au coin gris est utilisable et qu'elle est une méthode sûre et rapide pour déterminer qualitativement la composition nucléaire d'échantillons de faible activité.

page 170

Vom 16. Februar bis Ende Mai 1960 wurden in der Abteilung Strahlenschutz der Kernforschungsanlage Jülich über die routinemäßige Überwachung der Niederschlagsaktivität hinaus wöchentliche Proben von Regenwasser eingeholt. Als Auffänger diente ein quadratischer Kunststofftrichter von 1 m² Trichteröffnung. Die wöchentlichen Niederschlagsmengen wurden nach üblichen Verfahren eingedampft, die Rückstände in Reagenz-

gläsern überführt und die Gammaaktivitäten im Bohrlochkristall [NaJ (Tl) 2" × 2"] bestimmt. Abb. 1 zeigt den zeitlichen Verlauf dieser Aktivitäten, wobei als Ordinatenmaßstab die Impulsrate, bezogen auf das Gramm Trockensubstanz, gewählt wurde, während die waagerechten Striche der Treppenkurve (Abszisse) einer Woche Sammelzeit entsprechen.

¹ Ergänzt durch einen Beitrag zu einer Arbeit von Habashi und Schönfeld [1]



Wie auch in den Überwachungsstellen anderer Kernforschungsanlagen festgestellt wurde (diese Information beruht auf persönlichen Gesprächen mit Fachkollegen), erfolgte etwa 14 Tage nach dem jeweiligen Kernwaffenversuch ein beträchtlicher Anstieg der Niederschlagsaktivität. Bei der hier vorliegenden Untersuchung im Jülicher Raum betrug dieser Anstieg im Falle der ersten Versuchsexplosion das 45fache, bei der zweiten Explosion vom 1. 4. 1960 das 12fache des bisherigen Nullpegels, wobei einschränkend lediglich noch zu bemerken ist, daß diese Zahlen keine Absolutwerte sind (siehe Ordinate Abb. 1).

Vier Proben der in Abb. 1 dargestellten Versuchsreihe von insgesamt 14 Proben wurden in einem Graukeil- γ -Spektrometer (Telefunken MS Str. 531/1) auf ihre Nuklidzusammensetzung geprüft. Die Probe 1 ist ein Maß für den radioaktiven Nullpegel des Niederschlages vor Beginn der Kernwaffenexperimente von 1960. Die Probe 2, deren Aktivität dem ersten Kernwaffenversuch zuzuordnen ist, wurde kurz nach der Probenahme und 8 Wochen später noch einmal untersucht.

Tabelle 1 Untersuchungsdaten von vier Niederschlagsproben

Probe	Entnahmezeit	Im Trichter aufgefangene Niederschlagsmenge [l]	Trockensubstanz [g]	Ipm/g Trockensubstanz	Belichtungszeit des Graukeilspektrums [h]
1	17. 2.—24. 2.	7,92	0,678	78	2,0
2	24. 2.— 2. 3.	12,89	1,029	3280	1. Messung: 0,5 2. Messung: 1,5
3	23. 3.—30. 3.	15,9	1,850	388	1,5
4	6. 4.—13. 4.	13,42	1,742	935	1,0

Probe 3 liegt zwischen den beiden Explosionsdaten, und das Entnahmedatum der Probe 4 liegt 13 Tage nach der zweiten Explosion. Die für die Untersuchung der vier Proben wichtigsten Daten sind in Tabelle 1 zusammengestellt.

Die in Abb. 2 wiedergegebenen Spektren wurden auf Agfa-Agepe-Film mit den obengenannten Belichtungszeiten aufgenommen (Optik 1 : 2,8, Entwicklung 5 min in Agfa-Dokumol). Die Auswertung erfolgte unter Umgehung des Positivprozesses durch Projektion des Negativs auf Millimeterpapier bei 12facher Vergrößerung, wobei zur Energieeichung bekannte Spektren von ^{22}Na , ^{109}Cd und ^{113}Sn gesondert aufgenommen wurden. (Die in die Bilder der Abb. 2 einkopierten Energieskalen mit den entsprechenden Hinweispfeilen dienen lediglich der Anschaulichkeit dieser Bilder.)

Die Ergebnisse der Auswertung sind in Tabelle 2 zusammengestellt. Das Spektrogramm der Probe 1 zeigt eine nur sehr schwache Andeutung von Photopeaks, die sich nicht mehr mit Sicherheit analysieren lassen. Dieser Befund bestätigt die allgemein bekannte Tatsache, daß in den letzten beiden Jahren die Fallout-Aktivität erheblich zurückgegangen war. Im Vergleich zu diesem Befund konnten wir noch gegen Ende des Jahres 1959, allerdings in einer Sammelprobe von Niederschlagsrückständen über zwei Monate, im Graukeilspektrometer mit Sicherheit die Nuklide ^{144}Ce , ^{137}Cs und ^{95}Zr — ^{95}Nb nachweisen, worüber an anderer Stelle berichtet wurde [2].

Der starke Anstieg der Aktivität nach den beiden Kernwaffenversuchen zeigt sich sehr ausgeprägt in den Spektren der Proben 2 (1. Messung) und 4, wobei sich die Photopeaks eindeutig „frischen“ Spaltprodukten zuordnen lassen. Die Linien der kurzlebigen Nuklide ^{147}Nd , ^{132}Te und ^{131}I fehlen verständlicherweise sowohl bei der nach 8 Wochen erfolgten zweiten Messung

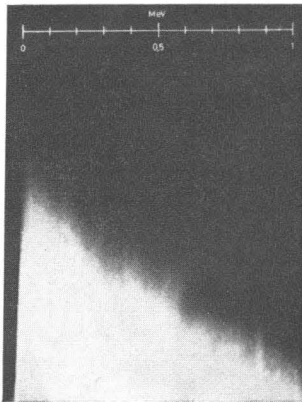
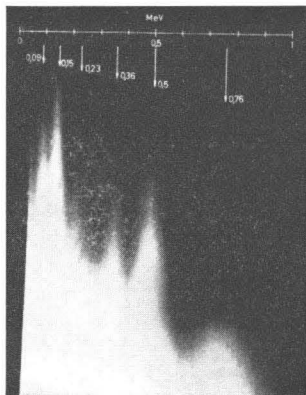


Abb. 2. Graukeil- γ -Spektrogramme von vier Niederschlagsproben aus dem Raum Jülich über die Zeit vom 17. 2.—13. 4. 1960

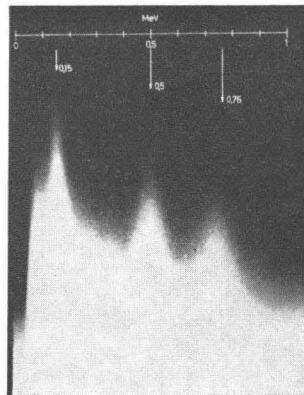
Probe 1

Sammlung 17. 2.—24. 2.
Messung 8. 3.

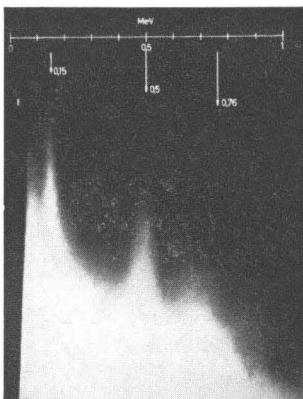


Probe 2

Sammlung 24. 2.—2. 3.
1. Messung: 8. 3.

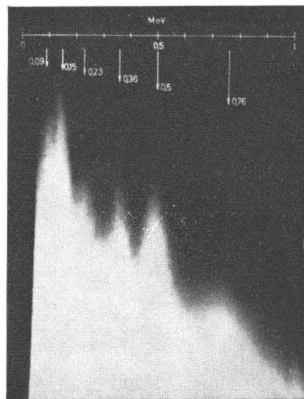


2. Messung: 5. 5.



Probe 3

Sammlung 23. 3.—30. 3.
Messung 22. 4.



Probe 4

Sammlung 6. 4.—13. 4.
Messung 4. 4.

der Probe 2 als auch in der zwischen den beiden Kernwaffenversuchen am 30. 3. 1960 entnommenen Probe 3.

Vorliegende Ergebnisse stehen somit in sehr guter Übereinstimmung zu den eingangs zitierten Unter-

Tabelle 2 Ergebnisse der Graukeilspektrometrie von vier Niederschlagsproben

Im Graukeil-spektrogramm ermittelte Energie [MeV]	In Frage kommende Nuklide (Energie [MeV], Halbwertszeit)	Proben				
		1	2 1. Mes- sung	2 2. Mes- sung	3	4
0,09	^{147}Nd (0,09 ; 11,1 d)	○	+	○	○	+
0,15	^{141}Ce (0,14 ; 31 d) ^{144}Ce (0,13 ; 285 d)	○	+	+	+	+
0,23	^{132}Te (0,225; 3,13 d)	○	+	○	○	+
0,36	^{131}I (0,364; 8 d)	○	+	○	○	+
0,50	^{140}Ba (0,54 ; 13 d) ^{103}Ru (0,495; 40 d) ^{106}Ru (0,516; 1,0 a)	○	+	+	+	+
0,76	^{95}Zr (0,757; 65 d) ^{95}Nb (0,768; 35 d)	○	+	+	+	+
1,60	^{140}La (1,596; 40 h)		+			

Zeichenerklärung zu Tabelle 2:

+ Linie vorhanden

○ Linie nicht vorhanden

+) Bei anderer Einstellung des Spektrometers als in Abb. 2 bei der Probe 2 gemessen

suchungen von Habashi und Schönfeld. Aus den Versuchsdaten der Tabelle 1 geht außerdem noch hervor, daß die Graukeil- γ -Spektrometrie, deren Methodik von Schulz [3] näher beschrieben wurde, im routinemäßigen Überwachungsbetrieb (Umgebungsüberwachung, Dekontaminierungsanlagen von Atomzentren usw.) ein sehr vorteilhaftes Verfahren für eine schnelle Gewinnung von Analysen darstellt. Die Hauptzeit für eine solche Untersuchung ist durch die erforderliche Exposition des Graukeilspektrogrammes gegeben, die sich im vorliegenden Aktivitätsniveau in Bereichen von 0,5 bis 1,5 Stunden bewegte. Geübte Laborkräfte vorausgesetzt, läßt sich der photographische Naßprozeß einschließlich Schnellwässerung und -trocknung auf etwa 25 Minuten reduzieren, so daß mit der genannten Auswertung des Spektrums von weiteren 10 Minuten Dauer in einer Gesamtzeit von 1 bis 2 Stunden eine vollständige qualitative Gammaanalyse vorliegen kann.

Literatur

- [1] Habashi F., Schönfeld T.: Atompraxis 6, 414 (1960)
- [2] „Radioaktivität in der Umgebung der Atomforschungsanlage des Landes Nordrhein-Westfalen bei Jülich“. Jahresbericht 1959, GFKF/S. 002
- [3] Schulz J.: „Graukeilspektrometrie“. Werkschrift Telefunken

Anschrift des Verfassers: Dr. R. Tzschaschel, KFA Jülich, Abteilung Strahlenschutz, Jülich-Süd